

Rec'd PCT/PTO 18 OCT 2005

10/553605

Best Available Copy

PCT/JP 2004/005785

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

30.6.2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて
いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed
with this Office.

出願年月日 2003年 4月22日
Date of Application:

出願番号 特願2003-116957
Application Number:
[ST. 10/C]: [JP 2003-116957]

出願人 旭化成せんい株式会社
Applicant(s):

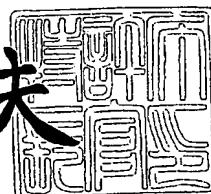
REC'D 22 JUL 2004
WIPO PCT

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年 6月 3日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井 康夫



出証番号 出証特2004-3047849

【書類名】 特許願

【整理番号】 X1030445

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 D04H 13/00

【発明者】

【住所又は居所】 滋賀県守山市小島町 515 番地 旭化成株式会社内

【氏名】 鈴鹿 隆治

【発明者】

【住所又は居所】 滋賀県守山市小島町 515 番地 旭化成株式会社内

【氏名】 中北 満次

【特許出願人】

【識別番号】 000000033

【氏名又は名称】 旭化成株式会社

【代表者】 蝶田 史郎

【代理人】

【識別番号】 100103436

【弁理士】

【氏名又は名称】 武井 英夫

【選任した代理人】

【識別番号】 100068238

【弁理士】

【氏名又は名称】 清水 猛

【選任した代理人】

【識別番号】 100095902

【弁理士】

【氏名又は名称】 伊藤 積

【選任した代理人】

【識別番号】 100108693

【弁理士】

【氏名又は名称】 鳴井 義夫

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 033396

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9713923

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 高強力不織布

【特許請求の範囲】

【請求項1】 熱可塑性樹脂からなる微細纖維および長纖維から構成される不織布であって、該微細纖維がメルトブロー法によるものであり、該長纖維のウエーブの全面に渡って進入し、該長纖維と結合及び／又は交絡した構造を有し、熱接着で一体化され、該不織布の目付が10～80g/m²であり、該微細纖維の含有率が50wt%以下であることを特徴とする高強力不織布。

【請求項2】 熱可塑性樹脂が、ポリエステルまたはその共重合体、もしくはそれらの混合物からなるものであることを特徴とする請求項1記載の高強力不織布。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、微細纖維による良好なフィルター性及びバリア性を有し、引張強力に優れた高強力不織布に関するものである。その特徴が活かされる様々な用途、例えば、土木、建築資材、農業資材、包装材、フィルター資材等の産業資材、衛生医療用資材、生活資材など多方面の分野に使用できる。

【0002】

【従来の技術】

従来、フィルター性とバリア性を両立する0.01d tex近辺の微細な纖度の糸条を得ることは通常の紡糸方法では難しく、不織布に応用される微細纖維は、フラッシュ紡糸法とメルトブロー法等の特殊な方法によってしか得ることができない。

フラッシュ紡糸法は、得られた素材がフィルター及びバリア性、引張強力に優れるが、素材が、一般的にはポリエチレンやポリプロピレンに限られること、特殊な製造方法による設備費の増大や、溶剤等の問題から製造コストが高く、用途が限られてしまうという問題があった。

【0003】

一方、メルトブロー法による微細纖維を用いた不織布は、フィルター及びバリア性をもつが、それ自体単独では引張強力等の機械強力が低いという問題がある。また、固体や流体の通過時に微細纖維構造が押し広げられ易く、構造を維持するために大きな目付を要したり、支持体を必要としたり、また取り扱い時に表面の微細纖維が弱いため、微細纖維が切斷させたり、欠落させてしまう問題があつた。

そこで、高強力の連続長纖維不織布と、メルトブロー法による微細纖維不織布の複合不織布を一体化させて両者の効果により、優れたフィルター及びバリア性能と引張強力に優れた不織布が提案されている。一体化は、ニードルパンチ、水流交絡、接着剤塗布による方法等も考えられるが、微細纖維構造の維持を考えると熱圧着による方法が最も望ましいと考えられる。

【0004】

従来の方法は、以下に示すものが挙げられる。

最も簡単には、長纖維の不織布、例えば、スパンボンド不織布と、メルトブロー法での微細纖維不織布を各々別個に作成し、それらを熱圧着で一体化する方法が特許文献1に提案されている。しかしながら、この方法では、各不織布作成時の熱履歴により、各不織布内の纖維結合のみが強くなり、従って各層間の一体化が弱く、各層が容易に剥離させやすいという問題を有している。さらに、糸条が熱履歴により強力が低下するため、複合した不織布の強力は小さくなり好ましくない。

【0005】

次に、既に作成されているスパンボンド不織布に、メルトブローの微細纖維を直接紡糸することにより、積層後に部分熱圧着しないことで、良好なフィルター性を得ることができる方法が特許文献2に提案されている。しかしこの方法では、機械強力はあらかじめ部分熱圧着されたスパンボンド不織布により発現させるため、熱圧着等でスパンボンド纖維を固定することになり、スパンボンドの纖維が動きにくく、メルトブローの微細纖維が直接紡糸され、メルトブローの微細纖維が進入する投錨（アンカー）効果により一体化するものの、予めスパンボンド纖維が部分熱圧着等で固定されているため、その熱圧着部分では、スパンボンド

繊維が動きにくく、フィルム状に固定されているため空隙が無く、そのためメルトブロー繊維は、スパンボンドの繊維空隙にはほとんど進入できない構造となる。

【0006】

さらに、少量のメルトブロー微細繊維の積層時には、バリア性、フィルター性の点でも好ましくない。また、アンカー効果により一体化しているとはいえ、各々の層を剥離させることは可能であり、もともと低い強力であるメルトブローの微細繊維がスパンボンド不織布の強力向上には大きく作用せず好ましくない。

既に作成されているスパンボンド不織布とメルトブロー繊維の層間の接着を目的に、エンボスによる積層後熱圧着する方法が特許文献3に提案されているが、スパンボンド不織布を作成した段階で糸条が固定されており、特許文献2と同じように、部分熱圧着部分にはメルトブロー繊維の進入がしにくくなり、また熱圧着によるスパンボンド不織布を使用すれば熱履歴が増え、好ましくない。

【0007】

更に、スパンボンドの繊維が部分熱圧着されないで、捕集ネット上にある状態（スパンボンドウェブという。）に、あらかじめ作成された巻出し可能なメルトブロー不織布を供給し熱圧着する方法が、特許文献4に提案されている。この方法によれば、メルトブロー不織布が、スパンボンドウェブに積層されて初めて熱圧着されるため、熱履歴でのスパンボンド繊維の物性低下は見られず、しかもメルトブロー不織布が部分熱圧着部分でのみ軟化して、スパンボンド繊維層にも進入し、層間の接着だけでなく、スパンボンド繊維間の接着剤として働くため、引張強力等に優れた特性を持つが、部分熱圧着部以外では、メルトブロー繊維はスパンボンド繊維に進入していない構造となり、本発明による同程度の表面強力つまり耐毛羽特性を維持した場合の引張強力よりは劣るものであり充分とは言えない。

最後に、スパンボンドウェブに、メルトブロー繊維を直接紡糸することが考えられるが、このような方法は、装置や製造方法として、特許文献1をはじめとして触れられてはいるが、実際には検討されてはいないか、または生産効率の良い製造方法とされているのみで、このような方法により得られる、本発明が述べる不織布の構造による効果についてはほとんど言及されていない状況である。

【0008】

【特許文献1】

特開平07-207566号公報

【特許文献2】

特開平02-289161号公報

【特許文献3】

特開平02-088056号公報

【特許文献4】

特公昭60-011148号公報

【0009】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、前述の従来技術の課題を解決し、毛羽等級を同等とした場合に、不織布の引張強力を公知の方法で作られたものよりも大きくすることができ、微細纖維によるフィルター及びバリア機能を有し、引張強力にすぐれた高強力不織布を提供することを目的とする。

【0010】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、高強力不織布において、下記の構成要件を採ることにより、毛羽等級を同等にした場合、公知の方法で作られたものより引張強力が大きくなり、微細纖維によるフィルター及びバリア機能を有し、引張強力にすぐれた高強力不織布となることを見いだし、本発明をなすに至った。

すなわち本発明は、熱可塑性樹脂からなるメルトブロー微細纖維および長纖維からなる不織布であって、メルトブロー微細纖維が長纖維のウェブに、全面にわたって、長纖維ウェップにメルトブロー微細纖維が折り重なるように進入し、長纖維と結合及び／又は絡んだ構造を持ち、不織布全体の目付が10～80g/m²、メルトブロー微細纖維の含有量は全体の50wt%以下とし、熱圧着で各層が容易には剥離できない程度に一体化することを特徴とする高強力不織布、である。

【0011】

以下に、本発明の高強力不織布について詳細に説明する。

本発明の高強力不織布は、熱可塑性樹脂からなるメルトブロー微細纖維および連続長纖維からなり、その熱可塑性樹脂は、ポリエステルまたはその共重合体、もしくはそれらの混合物からなるものが好ましい。例としては、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレートや、ポリトリメチレンテレフタレート、またイソフタル酸やフタル酸等が重合されたものであっても良い。

熱可塑性樹脂が、ポリアミドまたはその共重合体、もしくはそれらの混合物からなるものであってもよい。また、ポリオレフィンまたはその共重合体、もしくはそれらの混合物からなるものであり、ポリエチレン、ホモポリプロピレンもしくは α -オレフィン、エチレンをランダム共重合したポリプロピレンなどであってもよい。またポリエステル系樹脂またはポリアミド系樹脂、オレフィン類の樹脂を混合した樹脂からなってもよい。特にポリエステル素材であれば、優れた強力の発現とともに、良好な耐候性や耐熱性等の特徴を持つものを得ることができる。

【0012】

本発明の目的達成を阻害しない範囲で、原着や、酸化チタン、紫外線吸収剤や、熱安定剤、酸化防止剤等の任意の添加剤が添加されても良い。

本発明のメルトブロー微細纖維は、平均纖径が $0.5 \sim 7 \mu\text{m}$ が好ましく、 $0.5 \sim 3 \mu\text{m}$ の範囲がより好ましい。メルトブロー法では、平均纖径が $0.5 \mu\text{m}$ 未満に紡糸するには過酷な条件になりすぎ安定な条件とは言えず好ましくない。また、 $7 \mu\text{m}$ を超えると、連続長纖維の纖径に近く、微細纖維としてのフィルター性能、バリア性の発現にとって効率が悪く、好ましいとはいえない。

一般的に使用される良好なフィルター性能、バリア性を考えるとメルトブローの纖径は $3 \mu\text{m}$ 以下が好ましい。メルトブローの纖維層は単層でも良いし、複数層を重ねても良い。

【0013】

本発明の長纖維は、延伸により充分な強力の発現を考えて紡速等を設定することが必要であり、例えばポリエチレンテレフタレートでは紡速が 300m/m in 以上であり、更に 350m/m in 以上で延伸紡糸することが好ましい。

連続長纖維ウェブは単層でも良いし、複数層重ねたものであっても良い。

連続長纖維のカバーリング性、強度、紡糸安定性を考えると平均纖維径は7 μ ～12 μ の範囲が好ましい。連続長纖維のウェブは、スパンボンドのような紡糸方法により、摩擦帶電やコロナ帶電、糸条を分散させる仕組みにより均一性のよい、公知の方法により作成することが、未結合状態のウェブを生成しやすく、且つ経済的で、好ましい。

【0014】

本発明において、メルトブロー微細纖維が、連続長纖維の集合体（ウェブ）に、全面にわたって、連続長纖維の間隙にメルトブロー微細纖維が折り重なるよう进入した構造を持つことが必要となる。

この構造を詳細に述べると、メルトブロー微細纖維は、部分圧着部やその周辺、それ以外の部分を問わず連続長纖維の集合体の内部に进入している部分を有している。进入の状態については、熱圧着部分以外において、メルトブロー微細纖維との接合境界の表面に存在する隣接する連続長纖維間のみならず、表面の連続長纖維よりもやや内部側にある長纖維の下に入り接合する部分があることや、またメルトブロー微細纖維が連続長纖維の周に沿って絡むように配置、もしくは絡みつく形で接合されている部分がある構造を有している。

【0015】

また、それ以外の構造として、当然のことながら、メルトブロー微細纖維が、連続長纖維間の表面の空隙に沿って層を形成し、部分的に長纖維と接合したり、枝状部分を連続長纖維間の厚み方向の空隙へ伸ばし部分的に接合したりする構造も見られる。また、熱圧着部ではメルトブロー纖維が軟化し、連続長纖維間に進入し、連続長纖維間の結合を強化している構造を見ることができる。これらは、電子顕微鏡やマイクロスコープ等により確認することができる。

メルトブロー微細纖維を連続長纖維に折り重なるように进入させるためには、連続長纖維側の纖維の動きの自由度と、メルトブローの进入力が重要な点である。すなわち、纖維層形成時に供給される連続長纖維ウェブは、加熱ロール等で表面層を強化や平滑化を行ったり、捕集面への吸着させる吸引を行ったりするが、メルトブローの直接紡糸時に連続長纖維の糸条が動き、上記のメルトブロー微細

繊維を連続長纖維に折り重なるように進入する構造形成できる程度にとどめることが好ましい。メルトブローの紡糸条件として、微細纖維に進入力を与える為に、延伸加熱流体の速度、ノズルと連続長纖維ウェブが載せられている捕集面までの距離及び角度等の条件を適正に選定する。メルトブロー微細纖維同士またはメルトブロー微細纖維と連続長纖維の接合に関しては、メルトブロー微細纖維が捕集される時点での粘着性の有無を生じさせる様、メルトブローの温度条件をも考慮して適正に選定をおこなう。

【0016】

本発明の高強力不織布の全体の目付は、10～80 g/m²が好ましく、より好ましくは20～60 g/m²であり、メルトブロー微細纖維の含有率は50 wt %以下が好ましく、より好ましくは30 wt %以下である。

全体の目付が10 g/m²よりも小さくなると、過度にメルトブロー纖維が連続長纖維ウェブを突き抜け、ウェブが捕集面に喰い込む為安定生産が困難となったり、熱圧着後の風合いが悪くなったりするという問題がある。また80 g/m²を超えると、メルトブロー微細纖維の進入が連続長纖維層の表層まで及ばず効果が小さくなり好ましくない。

メルトブロー微細纖維の含有量が多ければバリア性やフィルター特性は向上するが、50 wt %を超えると、部分熱圧着時に軟化するメルトブロー纖維が多すぎ、連続長纖維層側に表面層化しやすく、そのためにエンボスロールに取られ易く、風合いも極めて硬くなり、また目付あたりの全体の引張り強力が、連続長纖維の不織布と比較して低くなる傾向が強くなるため好ましくない。

【0017】

熱圧着時において、メルトブロー微細纖維が連続長纖維ウェブに積層した形状であっても良いが、熱圧着用の加熱ロールがメルトブロー直接紡糸面に直接的に接すると、積層体の一体化時にメルトブロー微細纖維が溶融し、微細纖維構造を失いやすく、またメルトブロー纖維層側が熱圧着ロールに取られ易くなり安定生産が困難になってしまことから、メルトブローを吹きつけた上に更に連続長纖維を積層し（SMSと呼ばれているサンドイッチ構造）、直接メルトブロー微細纖維が加熱ロールに接触しない構造にすることが好ましい。この場合も前述した

目付及びメルトブロー纖維量に従う。この連続長纖維層も単層であっても良いし、複数層を重ねたものであっても良い。

熱圧着面積率は、不織布の表面積で3～50%の範囲が好ましく、柄は基本的には大きく影響しないが、メルトブロー微細纖維層を傷めるような大きな押し込み量をつけたエンボス等は避けることが望ましい。

熱圧着面積率が3%未満では、充分な布強力が得られず、50%よりも大きいと、非部分圧着部分が少なくなり、流体が通過できる部分が少なくなる傾向となり好ましくない。ただし、使用目的に合致したフィルター性能やバリア性があれば全面を熱圧着してもよい。

【0018】

熱圧着の方法としては、基本的には金属エンボス／金属フラットロールで1回通しであるが、金属エンボス／ゴムやペーパー、コットンロールとして2回通し、両面を熱圧着しても良い。

熱圧着する条件としては、温度は連続長纖維を形成する熱可塑性樹脂の融点から20～80℃程度低い温度範囲で、線圧は100～1000N/cmの範囲から選択する。ただし、あまりに圧力や温度が低いと連続長纖維間の接合やメルトブローの軟化進入による連続長纖維の間の接合が生じず、容易に層間が剥離したり、連続長纖維纖維が綿状に剥離したりし、十分な布強度が得られない。容易に層間剥離する事なく、強度や取り扱いから考えて、毛羽指数をほぼ3級以上とする熱圧着条件を選択することが好ましい。

【0019】

【発明の実施の形態】

以下に本発明を実施例などを用いて具体的に説明するが、本発明はこれら実施例などに何ら限定されるものではない。各特性値の測定法は以下の方法によるものである。

(1) 繊径: μ m

生産された不織布の両端10cmを除きCD方向にほぼ5等分して、1cm角の試験片をサンプリングし、マイクロスコープで纖維の直径を各30点づつ測定し、その平均値から纊径を算出した。（小数点第2位を四捨五入）。

マイクロスコープは、キーエンス製 VT-8000 使用し、連続長繊維では倍率 1000 倍、メルトブロー微細繊維では倍率 2500 倍で測定した。

【0020】

(2) 毛羽等級 (耐毛羽性)

生産された不織布の両端 10 cm を除き幅 20 cmあたり MD 方向に 25 mm × 300 mm の試験片を採取し、日本学術振興会型堅牢度試験機を用いて、摩擦子の荷重が 200 g、摩擦子側には摩擦係数が適当と考えられるリンレイクロス一重畳包用 No. 314 布粘着テープを使用し、50 回動作させて、以下の基準で対毛羽性を各々の試験片で等級づけ、平均値により毛羽等級を決定した。（小数点第 2 位で四捨五入）

- 1 級：試験片が破損するほど繊維が剥ぎ取られる。
- 2 級：試験片が薄くなるほど甚だしく繊維が剥ぎ取られている。
2. 5 級：毛玉が大きくはっきり見られ、複数箇所で繊維が浮き上がりはじめる。
- 3 級：はっきりとした毛玉ができはじめ、または小さな毛玉が複数見られる。
3. 5 級：一ヵ所に小さな毛玉ができはじめる程度に毛羽立っている。
- 4 級：毛羽立ちがない。

【0021】

(3) 引張強力 [N/3 cm 幅]

生産された不織布の両端 10 cm を除き、幅 20 cmあたり 3 cm × 約 30 cm の試験片を MD 方向、CD 方向の各 1 枚を採取し、定速伸張試験型引張試験機に把握長 10 cm で取付け、30 cm/分の引張速度で試験片が破断するまで加重を加える。試験片の最大荷重時の強さの平均値を MD、CD 方向で求めた。（N 単位で小数点第 2 位を四捨五入）

(4) 通気度 [cc/cm²/sec]

JIS-L-1096 に記載のフラジール法に準じて測定した。

【0022】

【実施例 1 ~ 4】

連続長繊維は、ポリエチレンテレフタレート（オルソクロロフェノールを用いた1%、25℃法の溶液粘度 $\eta_{sp}/c = 0.77$ ）を用い、公知のスパンボンド法により、紡糸温度300℃で平均繊径 $13\mu m$ 、目付 $25g/m^2$ の未結合ウェブを捕集ネット上に作成した。

微細繊維は、ポリエチレンテレフタレート（同じく溶液粘度 $\eta_{sp}/c = 0.50$ ）を用い、公知のメルトブロー法により、紡糸温度300℃、加熱エアは320℃で $1000Nm^3/h$ で、平均繊径 $1.6\mu m$ で $10g/m^2$ になるよう吐出し、糸条を直接、連続長繊維ウェブ上に噴出させる。メルトブローノズルから連続長繊維ウェブまでの距離は100mmとし、メルトブロー直下の吸引風速を約 $7m/sec$ に設定し、本法によって、メルトブロー微細繊維が連続長繊維集合体へ進入したものを得ることが出来る。

さらに、これらの上に同じくポリエチレンテレフタレートの連続長繊維をウェビングし、エンボスロールとフラットロール間で熱圧着して作成した。エンボスロールは、布折り目柄、面積率22%とし、フラットロールとの組み合わせであり、線圧 $4N/cm$ 一定で熱圧着温度を変えて実施例1～4サンプルを採取した。得られたサンプルの特性を表1に示した。

【0023】

【実施例5、6】

実施例1～4と同様に作成するが、熱圧着時の条件として温度210℃一定で、線圧を変えて実施例5、6のサンプルを採取した。得られたサンプルの特性を表2に示した。

【比較例1～4】

ポリエチレンテレフタレート（溶液粘度 $\eta_{sp}/c = 0.50$ ）を用い、公知のメルトブロー法により、紡糸温度300℃、加熱エアは320℃で $1000Nm^3/h$ で、平均繊径 $1.6\mu m$ で、メルトブローノズルから連続長繊維ウェブまでの距離は100mmとし、 $10g/m^2$ になるよう吐出し、自己接着したメルトブローの单層不織布得る。

【0024】

連続長繊維は、ポリエチレンテレフタレート（オルソクロロフェノールを用い

た1%、25℃法の溶液粘度 $\eta_{sp}/c = 0.77$ を用い、公知のスパンボンド法により、紡糸温度300℃で平均纖径 $13\mu m$ 、目付 $25g/m^2$ の未結合ウェブを捕集ネット上に作成し、上記の別途作成したメルトブロー単層不織布を、供給し積層させる。さらに、これらの上に同じくポリエチレンテレフタレートの連続長纖維をウェビングし、エンボスロールとフラットロール間で熱圧着して作成した。エンボスロールは、布折り目柄、面積率22%とし、フラットロールとの組み合わせであり、線圧 $4N/cm$ 一定で熱圧着温度を変えて比較例1～4のサンプルを採取した。得られたサンプルの特性を表1に示した。

【比較例5、6】

比較例1～4と同様に作成するが、熱圧着時の条件として温度210℃一定で、線圧を変えて比較例5、6のサンプルを採取した。得られたサンプルの特性を表2に示した。

【0025】

【表1】

表1

サンプル	熱圧着温度 ℃	毛羽等級	平均引張強力 N/3cm	実施例/比較例	
				%	
実施例1	170	3	85	121	
実施例2	190	3.5	115	115	
実施例3	210	3.8	135	117	
実施例4	230	4	125	114	
比較例1	170	3	70	—	
比較例2	190	3.5	100	—	
比較例3	210	3.8	115	—	
比較例4	230	4	110	—	

【0026】

【表2】

表2

サンプル	線圧 N/cm	毛羽等級	平均引張強力 N/3cm	実施例/比較例
				%
実施例5	3	3.5	115	115
実施例6	5	3.7	123	114
比較例5	3	3.5	100	—
比較例6	5	3.7	108	—

【0027】

熱圧着の温度、線圧を変えて熱圧着の状況を変化させ、公知の方法である比較例と本発明の実施例を比較した結果が表1、2である。得られたサンプルの毛羽等級は3～4級であり、ほぼ同等の毛羽等級であれば、引張強力においては、本発明は公知の方法で作られたものよりも驚くべきことに10%も大きくなることが判明した。

これらの効果は、公知の方法の技術に加え、メルトブロー微細纖維が連続長纖維の集合体に、全面で連続長纖維にメルトブロー微細纖維が折り重なるように進入することにより、連続長纖維と結合または絡んだ構造を持つことによる。公知の技術に比較して、メルトブロー微細纖維を連続長纖維との接触及び固定点が連続長纖維ウェブの表面だけでなく内部でも生じることで、メルトブローによる連続長纖維との結合強化が図られ、連続長纖維がより数多くの固定点で支えられることにより、同程度の毛羽性になる圧着条件で、引張強力の向上が生じるのである。

【0028】

このことは、メルトブロー微細纖維を支持する連続長纖維が強固になったとも捉えることができ、本発明をフィルターとして使用する際、変形時や流体通過時の微細纖維構造の目が開くことを防止する効果も向上していると考えられる。

また、本発明で連続長纖維側の面の触感が変化するのは、メルトブローの進入により、進入される連続長纖維の自由度が小さくなることから理解できる。繰り

返しにはなるが、連続長繊維ウェブに別途作成したメルトブロー不織布を供給することによって得られる公知の方法では、本発明のレベルには達しない。

【実施例 7、 8】

実施例 3 と同条件で、全体目付を 20 g/m^2 、 60 g/m^2 としたものをそれぞれ実施例 7、 8 とする。得られた不織布の通気度を表 3 に示す。

【0029】

【表 3】

表3

	目付け	メルトブロー 比率	通気度
	g/m^2	wt%	$\text{cc/cm}^2/\text{sec}$
実施例7	20	17	169
実施例3	40	17	55
実施例8	60	17	23

【0030】

【発明の効果】

本発明により、メルトブロー微細繊維が連続長繊維の集合体に、全面で連続長繊維にメルトブロー微細繊維が折り重なるように進入し、連続長繊維と結合または絡んだ構造を持つ高強度不織布が得られ、それにより、連続長繊維とメルトブローの相互の構造が強化され、微細繊維によるフィルター及びバリア機能を有し、同等の毛羽等級で熱圧着すれば公知の方法よりも約 10 % 程度引張強力にすぐれる効果を有する高強度不織布を提供することができた。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 従来技術では不十分であった、同等の毛羽等級で、引張強力を公知の方法で作られたものよりも大きくした、微細纖維によるフィルター及びバリア機能を有し引張強力にすぐれた高強力不織布を提供する。

【解決手段】 熱可塑性樹脂からなるメルトブロー微細纖維および連続長纖維からなり、メルトブロー微細纖維が連続長纖維の集合体に、全面で連続長纖維にメルトブロー微細纖維が折り重なるように進入し、連続長纖維と結合または絡んだ構造を持ち、全体の目付が10～80g/m²、メルトブロー微細纖維の含有率が50wt%以下、熱圧着で各層として容易には剥離できない程度に一体化することにより、同等の毛羽等級で、引張強力が公知の方法で作られたものよりも大きくなる、微細纖維によるフィルター及びバリア機能を有し引張強力にすぐれた高強力不織布。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号 特願2003-116957
受付番号 50300666377
書類名 特許願
担当官 第六担当上席 0095
作成日 平成15年 4月23日

<認定情報・付加情報>

【提出日】 平成15年 4月22日

次頁無

出証特2004-3047849

【書類名】 出願人名義変更届（一般承継）

【提出日】 平成15年10月 2日

【あて先】 特許庁長官 殿

【事件の表示】

【出願番号】 特願2003-116957

【承継人】

【識別番号】 303046303

【氏名又は名称】 旭化成せんい株式会社

【代表者】 坂本 正樹

【提出物件の目録】

【物件名】 商業登記簿謄本 1

【援用の表示】 平成03年特許願第340572号

【物件名】 承継証明書 1

【援用の表示】 平成03年特許願第340572号

特願 2003-116957

出願人履歴情報

識別番号 [000000033]

1. 変更年月日 2001年 1月 4日

[変更理由] 名称変更

住所 大阪府大阪市北区堂島浜1丁目2番6号
氏名 旭化成株式会社

特願 2003-116957

出願人履歴情報

識別番号 [303046303]

1. 変更年月日 2003年 8月20日

[変更理由] 新規登録

住所 大阪府大阪市北区堂島浜一丁目2番6号
氏名 旭化成せんい株式会社

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19)世界知的所有権機関
国際事務局(43)国際公開日
2004年11月4日 (04.11.2004)

PCT

(10)国際公開番号
WO 2004/094136 A1

(51)国際特許分類: B32B 5/26

(21)国際出願番号: PCT/JP2004/005785

(22)国際出願日: 2004年4月22日 (22.04.2004)

(25)国際出願の言語: 日本語

(26)国際公開の言語: 日本語

(30)優先権データ: 特願2003-116957 2003年4月22日 (22.04.2003) JP

(71)出願人(米国を除く全ての指定国について): 旭化成せんい株式会社 (ASAHI KASEI FIBERS CORPORATION) [JP/JP]; 〒5308205 大阪府大阪市北区堂島浜一丁目2番6号 Osaka (JP).

(72)発明者: および

(75)発明者/出願人(米国についてのみ): 鈴鹿 隆治 (SUZUKA, Ryujii) [JP/JP]; 〒5240012 滋賀県守山市播磨田町3113の2 Shiga (JP). 中北 满次 (NAKAKITA, Mitsushi) [JP/JP]; 〒5240002 滋賀県守山市小島町1534 Shiga (JP).

(74)代理人: 青木 篤, 外 (AOKI, Atsushi et al.); 〒1058423 東京都港区虎ノ門三丁目5番1号 虎ノ門37森ビル 青和特許法律事務所 Tokyo (JP).

(81)指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

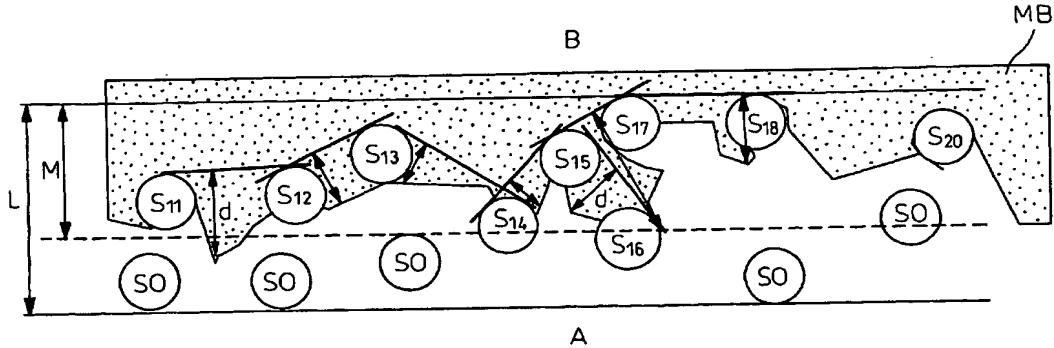
(84)指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ヨーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:
— 國際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイドスノート」を参照。

(54) Title: HIGH STRENGTH NON-WOVEN FABRIC

(54)発明の名称: 高強力不織布



in that it comprises a thermoplastic synthetic filament layer having a fiber diameter of 7 to 20 μm as upper and lower layers and a thermoplastic synthetic fine fiber layer having a fiber diameter of 5 μm or less as an intermediate layer, and respective layers are integrated through pressing, wherein the fine fibers in the fiber layer enter into at least one face of the filament layer with an entrance index of 0.36 or more, and bind with, envelop or interlace with the filament to form a mixed structure, and wherein the laminated non-woven fabric exhibits a weight of 10 to 250 g/m^2 and a bulk density of 0.20 g/cm^3 or more. The above spun-bonded non-woven fabric exhibits various durable filter and barrier functions, and has a tensile strength markedly superior compared to a conventional spun-bonded non-woven fabric.

[統葉有]

WO 2004/094136 A1



(57) 要約:

本発明は、纖維径 $7 \sim 20 \mu m$ の熱可塑性合成長纖維層を上下層、纖維径が $5 \mu m$ 以下の熱可塑性合成微細纖維を中間層とし、各層が圧着により一体化されされた積層不織布において、微細纖維が長纖維層の少なくとも一面に進入指数 0.36 以上で進入し、長纖維を結合、包埋又は交絡して混和した構造を有し、積層不織布の目付が $10 \sim 250 g/m^2$ 以下、嵩密度が $0.20 g/cm^3$ 以上であることを特徴とする。

本発明のスパンボンド系積層不織布は、不織構造を形成する微細纖維層による耐久性のあるさまざまなフィルター及びバリア機能を有し、スパンボンド不織布に比べて遙かに引張強力に優れるものである。

明細書

高強力不織布

技術分野

本発明は、引張強力に優れ、良好なフィルター性及びバリア性を有する改良されたスパンボンド系積層不織布に関するものである。

本発明の改良されたスパンボンド系積層不織布は、引張強力に優れたフィルター性及びバリア性を有する不織布であって、スパンボンド系長纖維不織布の特徴が特に活かされる様々な用途、例えばハウスラップ、壁材、屋根下材等の建築用資材、防音材や吸音材、食品フィルター、エアフィルター、液体フィルター、掃除機フィルター、メンブレン支持体等のフィルタ用材料、フィルター資材等をはじめとする産業用資材や農業資材、保護衣、使い捨てオムツ、滅菌ラップ、医療用フィルター等の衛生・医療資材、包装材料、乾燥剤包材、懐炉包材、粘着性を有するテープ基材、ダウン押え、靴材などの生活製品資材等の材料など多くの利用分野で、新しい用途を拓くものである。

本発明の改良されたスパンボンド系不織布は、それがスパンボンド／メルトブロー／スパンボンドの積層不織布であり、その積層構造を変化させたことにより、引張強力に優れ、良好なフィルター性、バリア性を有する不織布であり、又それがポリエステル樹脂やポリアミド系樹脂素材による不織布であるにおいて、素材特性による高強力性、耐熱性、化学的親和性や親水性を備えているので、ポリオレフィン系スパンボンド系不織布に比べて、上記した各種の最終製品の機能を多様にすることができるばかりでなく、製造工程での自由度を高めることができますことにより、更に使用される対象が広

がり、不織布材料としての用途を、新しく拓くことができる。例えば、フィルター性、バリア性と引張強力に加えて耐熱性を持つとテープ基材、メンブレン等の支持体では、乾燥や塗布工程でも使用でき、基材融点と処理温度が近く、素材の強力の低下や変形を避けるヒートシールや、ホットメルト材での接着が必要とされる分野にも使用できるようになる。

従来の技術

フラッシュ紡糸法やメルトブロー法による0.01 d tex 前後の微細纖維による不織布構造の形成は、フィルター性とバリア性とを共に備える不織布の製造に好都合である。

汎用のフラッシュ紡糸不織布は、纖維形成上、ポリエチレンやポリプロピレンなどのポリオレフィン系不織布に限られている。当然のことながら、ポリエステルやポリアミド纖維によるスパンボンド系不織布に比べて、耐熱性が著しく低い不織布材料でもある。フラッシュ紡糸による不織布の商業的な製造は、特殊な製造設備と特殊な溶剤の使用が不可欠でもある。

一方、メルトブロー紡糸法による不織布は、メルトブロー紡糸法により、多様な樹脂を用いて纖径5 μm 以下の微細纖維で形成される不織布構造を調製することができる。微細纖維による網目構造に基づいて得られるフィルタ性及びバリア性機能をもっていることが特徴でもある。不織布構造が微細纖維で形成されているので、メルトブロー紡糸法による不織布は、反面、引張強力等の機械強力が劣る他、被ろ過体である固体や流体の浸入、通過で、微細纖維の間隙が押し拡げられる等、不織布構造が比較的容易に変形、破壊する欠点をもっている。このような理由で、メルトブロー不織布に長纖維不織布を付加した複合不織布構造を形成することで機械的物性につ

いて補強されたフィルタ性とバリア性を有する長纖維系積層不織布を得る試みが知られている。

それぞれ予め調製されたメルトブロー微細纖維不織布と連続長纖維不織布（＝スパンボンド不織布）を積層し、積層構造を一体化して、機械強力の優れるフィルター及びバリア性に優れた複合不織布が特開平7-207566号公報で知られている。この提案による積層布帛では、不織布の構成纖維が各不織布構造内でリジッドに固定されて、自由度がなく、そのために積層されたメルトブロー不織布の微細纖維がスパンボンド長纖維層に拡散することがなく、積層体が熱カレンダロール又は熱エンボスロール間に通されることで、それぞれの不織布が複数回の熱履歴を被り、その分不織布の引っ張り強度が更に低下する。又、低目付のメルトブロー不織布は、著しく変形し易く取り扱いが煩雑なこともある、積層構造の調製、加工の過程で、微細構造が引き伸ばされ易く、均一な層を形成することが困難である。

長纖維不織布の上面に、メルトブロー紡糸により直接に極細纖維の堆積ウエブを捕集形成した積層シートに非加熱的圧着法を適用して、良好なフィルター性をもった複合不織布を得る方法が特開平2-289161号公報に記載されている。また同様の方法で肌ざわりの良好な衛生材料を得る方法が特開平2-112458号公報に記載されている。この複合不織布では、スパンボンド長纖維層の構造が予め固定されたものであるので、メルトブロー微細纖維を長纖維層内部に実質的に進入させ、長纖維と絡ませて、進入した微細纖維の投錨（アンカー）効果の作用により、積層構造に抗層剥離性を付与することが期待できない。

特開平2-88056号公報には、捕集面上に堆積せしめた長纖維フィラメントのシート状ウエブの面上に極細纖維不織布を載せ、

この上に更に付加して配置したスパンボンド不織布の層間を接着させることを目的としたロール間加工及びエンボスによる積層後熱圧着する方法が記載されている。接着層として適用されるメルトブロー不織布の不織布構造が予め固定されてしまっているので、メルトブロー纖維をスパンボンド不織布の長纖維層へと進入させて、投錨（アンカー）効果を発揮することができないので、期待される微細纖維による熱圧着接合効果は得られない。

特公昭 60-1148号公報にも同様に、スパンボンド法によるポリオレフィン系長纖維不織布の製造において、移動捕集ネットの面上に堆積された長纖維ウェブ（スパンボンドウェブと呼ぶ）の裸面に、予め調製され巻き出し源に巻かれたメルトブロー極細纖維不織布を供給して積層して後、熱エンボスロールを用いる熱圧着法で積層不織布構造を固定する方法が記載されている。この公知方法においては、メルトブロー不織布を構成する微細纖維によるスパンボンド長纖維層の層間の接着剤として機能が示唆される。しかし、接着層として適用されるメルトブロー不織布は、予め不織布構造が固定されている材料なので、メルトブロー微細纖維がスパンボンド不織布の長纖維層内へ実質的に進入し、補強的な作用をすることを殆ど期待できない。

発明の開示

本発明の目的は、引張強力に優れ、フィルター及びバリア機能を有し不織布構造の微細纖維層の長纖維層へのより高度な進入により、微細纖維層と長纖維層がより高度に相互に補強し合うことにより、微細纖維層構造がより強固で積層不織布が高い引張り強力であるスパンボンド系積層不詳布の提供を目的とする。

本発明のより具体的な目的は、フィルター性とバリアー性機能を

維持する安定した構造の微細纖維不織布層とその両側に配置される前記微細纖維により構造補強された長纖維層が積層一体化された不織布構造でなるスパンボンド系積層不織布からなる高強力不織布を提供することにある。

本発明の他の目的は、微細纖維層の構造が強固で、積層不織布が高い引張り強力をもつことに加えて、素材をポリエステル系、ポリアミド系纖維とすることで、高強力、耐熱性、化学親和性、親水性等、前者では耐放射線性、寸法安定性など、後者では、油に対する対膨張性、染色性に優れたポリエステル纖維系、ポリアミド纖維系スパンボンド系高強力不織布を提供することにある。

本発明の更に他の目的は、前記した引張強力及び耐毛羽性に優れ、フィルター及びバリア機能を有し、不織布構造を補強安定化させ、スパンボンド系高強力不織布の更に安定した製造プロセス方法の提供である。

本発明者等は、微細纖維不織布層の両側面に接して配置される長纖維層における微細纖維の絡合、混和の諸様態と積層不織布の引張り強力等の主要性能の相関関係について検討したところ、積層不織布を形成するにおいて、長纖維ウェブ層の層内部へのメルトブロー微細纖維の混和（＝進入）態様が積層不織布の引張り強度、引裂き強度、5%モジュラス、耐毛羽性、層間剥離強力等と顕著な正の相関のあることを見出した。すなわち長纖維ウェブ層の層内部でのメルトブロー微細纖維の進入、混和が進行すればする程、積層不織布の引張強力が顕著に向上することを見出し、本発明を着想した。

図面の簡単な説明

図1は、本発明の改良されたスパンボンド系積層不織布のC D（縦）方向の断面であって、メルトブロー微細纖維が長纖維層内部に

向けて進入して形成された微細纖維混和層を含む積層不織布構造を模式的に説明する図である。

図2は、本発明のスパンボンド系積層不織布の積層断面構造を模式的に示す図である。

図3は、比較例のスパンボンド系積層不織布の積層断面構造を模式的に示す図である。

図4は、本発明の実施例1～4、比較例1～4のスパンボンド系積層不織布の毛羽等級に対する平均引張り強力を示す。

図5は、本発明の実施例5～8、比較例5～8のスパンボンド系積層不織布が示す引裂強力／引張り強力の相関図である。

本発明のスパンボンド系不織布は、纖維径が7μm以上で20μm以下の熱可塑性合成長纖維層を上下層とし、纖維径が5μm以下の熱可塑性合成微細纖維層を中心層とする圧着により一体化された積層不織布において、微細纖維が長纖維層の少なくとも一面側に進入指数が0.36以上で進入して長纖維と混和した不織布層構造を有し、該積層不織布が目付け10g以上250g/m²以下であり、嵩密度が0.20g/cm³以上であることを特徴とする高強力不織布である。

本発明のスパンボンド系積層不織布は、熱可塑性纖維形成性合成重合体を用いて少なくとも1層以上の長纖維を捕集コンベアー上に紡糸し、熱可塑性合成樹脂を用いてメルトブロー法で結晶化度が15%以上40%以下であるような微細纖維を少なくとも1層以上吹き付け、その後長纖維を少なくとも1層以上積層し、熱圧着温度が長纖維の融点より-10～-80°Cであり、熱圧着の線圧が100N/cm～1000N/cmであり、エンボスロール又はフラットロールを用いた加圧により一体化することによって調製することができる。

以下に、本発明の引張強力にすぐれた、フィルター及びバリア機能を有する不織布及びその製造方法を詳細に説明する。

本発明のスパンボンド系積層不織布は、いわゆる熱可塑性合成繊維の長繊維ウェブ (SW) のシートが熱可塑性合成繊維のメルトブロー微細繊維ウェブ (MW) のシートを挟む配置でなるいわゆるSMS積層ウェブの繊維間及び層間構造が熱圧着作用により一体化して形成されたものであり、そのメルトブロー微細繊維が特定の進入指数で連続長繊維層に高度に進入した固定三層不織布構造を有するスパンボンド系積層不織布である。

本発明のスパンボンド系積層不織布の構造は、スパンボンド長繊維不織布の製造プロセスにおいて、移動する捕集体面状に溶融紡糸された多数本の連続長繊維群の第1の堆積長繊維ウェブ (SW1) の全面に直に吹き付けられたメルトブロー微細繊維ウェブ (MW) 層、更にこの層の全面に多数本の連続長繊維群の第2のウェブ (SW2) を堆積して、全体として前述のシート状SMSウェブ積層体を形成して、メルトブロー微細繊維ウェブ (MW) 層がサンドイッチ状で熱圧着される工程の間に、一体化され、メルトブロー微細繊維が全面で特定の進入係数で連続長繊維層に高度進入した三層積層不織布構造が形成されている。

本発明のスパンボンド系積層不織布は、前記したようにメルトブロー微細繊維が特定の進入指数で連続長繊維層内に高度に進入し、三層積層不織布構造に基づいて、メルトブロー微細繊維層と、長繊維層が拠り高度に相互に補強し合った構造をとることで、微細繊維層構造が強固で、良好なメルトブロー微細繊維によるフィルター性、バリア性をもちながら、そして耐毛羽性も一定に維持しながら、スパンボンド系積層不織布の引張強力を顕著に高めることに成功した。

図1は、本発明のスパンボンド系積層不織布のCD方向における断面構造を示す模式図で、連続長纖維層にメルトブロー微細纖維ウェブの紡糸ノズル側の面上に更に長纖維ウェブ（図示省略）を積層一体化した構造を示す断面図である。

本発明でいう三層積層不織布構造は、図1に示されるように、スパンボンド法による長纖維層（L）メルトブロー微細纖維層（MB）更に紡糸ノズル側に積層されたもう一つの長纖維層（図示なし）からなり、スパンボンド法による長纖維層（L）は、紡糸ノズル側にメルトブロー微細纖維が進入して形成された長纖維（S₁～S_n）とメルトブロー微細纖維の混和層（M）を含んでいる。なお、長纖維層（L）は、メルトブロー微細纖維を含んでいない長纖維（SO）でなる層も存在する。図中、補集面側をA、一方ノズル面側をBで表わす。

図1において、網掛け部で示した部分が微細纖維層であり、丸形断面で示したもののが長纖維の断面である。微細纖維層の進入のタイプとしては、S13やS15の様に完全に長纖維を包埋しているものや、S11やS12等のように断面の半分以上包んでいるものや、S14やS16のように断面の一部と接着結合しているものがある。この様な、微細纖維の長纖維層への進入、結合、包埋の程度は、後述する進入指数を用いて評価できる。進入指数が大きいほど、微細纖維の長纖維への進入度合いが大きくなり、微細纖維の長纖維を包み込む度合いが大きくなるといえる。

この様に進入した微細纖維は、フィルム状ではなく、纖維状でしかも集合状態を維持しながら長纖維層の纖維間の隙間に進入し、長纖維層の纖維間隙を埋めていく働きを有している。この現象は、長纖維層を補強する作用とともに長纖維間の間隙を埋めることでフィルター作用、バリアー性を向上させる、種々の遮蔽効果、分離作用

付与することができる。

さらに、長纖維層の纖維をこの様な特殊な形状で補強、固定化することで、長纖維はしっかりと固定化され、耐摩耗性に優れ、表面の耐毛羽性の向上にも寄与するものである。

本発明のこの様な特異な構造は、エンボスによる部分熱圧着による一体化においては、熱圧着部を除く他の非圧着部分で全面に分布して存在する。又、フラットロールの加熱と加圧による一体化では、熱融着なく、全面にわたって、この構造が存在する。

本発明において、メルトブロー微細纖維の進入指数は、後述する方法に拠って測定される相隣する長纖維間（但し、3直徑を超えない距離にあること）を埋めるメルトブロー微細纖維相深さの平均値（d）を長纖維の纖径（D）で割った、次式（1）で定義される値である。

$$\text{進入指数} = d / D \quad (1)$$

換言すれば、進入指数とは、長纖維層を構成する長纖維間に占めるメルトブロー微細纖維の充填度での混和度合いを表す。したがって、本発明の3層積層不織布は、不織布構造上、メルトブロー微細纖維が進入指数で特定される充填度で混和した長纖維層を含む積層不織布構造に特徴をもっている。

本発明ではメルトブロー微細纖維が、連続長纖維層へ0.36以上で進入してのメルトブロー微細纖維と連続長纖維が混和している構造をもつ。より詳しくは、進入指数が0.4以上である。メルトブロー微細纖維層に更に連続長纖維ウェブを積層するがその方向への進入は少ない。

ここで、進入指数の算出は、熱圧着時のエンボスされた部位を除いて行われる。熱エンボスされた部位を進入指数の評価の対象としない理由は、被熱圧着エンボス部分は、電子顕微鏡観察の結果から

概ね、微細纖維と長纖維とが共に溶融乃至高圧下に融解して纖維構造が破壊され、その部位の断面形状の観察から、両者の混和程度の判別が困難であるからである。

本発明において、スパンボンド長纖維層を構成する連続長纖維は、長纖維層に求められるカバーリング性、機械的強度、スパンボンド製造プロセスにおける紡糸安定性の観点から、纖径が 7μ (P E Tでは 0.53 d tex 、N y 6では 0.42 d tex) 以上、好ましくは、 12μ 以上である。又、上限は $20 \mu \text{m}$ 以下である。連続長纖維層は、移動捕集コンベア上に堆積された連続長纖維糸群のウェブ堆積層であるから、公知のスパンボンド紡糸プロセスにおける摩擦帶電やコロナ帶電または機械的な糸条分散手段を経て長纖維のウェブ内分散が均一性な長纖維ウェブ層から調製された不織布構造をもっている。連続長纖維層は、単層でもよいし、複数層を重ねた層であってもよい。なお、連続長纖維ウェブの調製方法は、例えば特公昭 60-11148号公報、特公昭 48-38025号公報等数多くの既知文献に記載されている。

メルトブロー微細纖維層は、平均纖径が $0.5 \mu \text{m}$ 以上 $5 \mu \text{m}$ 以下、 3μ 以下が好ましい。Ind. Eng. Chem. 48. v o 18. 1342-1346、特公昭 56-33511号公報等多数の既知文献記載の方法、装置を用いて容易に調製することができる。メルトブロー紡糸による微細纖維は、纖径が 0.5μ よりも小さくなると、紡糸条件が過酷になりすぎ製造ができる安定な条件とはいえず好ましくない。微細纖維の纖径が 5μ より大きいと連続長纖維の纖径に近くなり、微細纖維によるフィルター性能、バリア性を発現させることができないばかりでなく、微細纖維の連続長纖維層内への進入による混和層の形成が困難となる。進入においてメルトブロー微細纖維の纖径は、連続長纖維の纖径の約5分の1

以下が好ましいことから、3 μ以下がより好ましい。メルトブロー微細纖維を、前述の未結合状態の連続長纖維ウェブ上面に直にメルトブロー紡糸法により吹き付けることで、前記した進入指数0.36以上の混和層を形成することができる。吹き付けられたメルトブロー微細纖維のもつ結晶化度が15%以上40%以下に制御することで、熱圧着加工による不織布構造の固定を確実かつ安定して行える。

結晶化度が15%以下では、軟化点が低くなりすぎ、熱圧着ロールで一体化する時メルトブロー微細纖維が、長纖維層から滲みでたり、長纖維層の間隙から露出したりして、熱圧着ロールにメルトブロー纖維が付着したり、エンボス部位に膜、溶融塊となったり、またロールに接着して安定的な生産ができなくなる。一方、40%以上では、メルトブロー微細纖維と連続長纖維との接着力が低下、メルトブロー纖維のと長纖維への進入が減少して積層の層剥離や積層不織布の強度発現が妨げられる。

メルトブロー微細纖維は単層でも、複数層を重ねても堆積させることができる。しかし、混和層は長纖維層に直に吹き付ける第1層のメルトブロー微細纖維によって形成されるのであるから、第1層目の平均纖径が小さいほど進入指数を大きくすることができるので好ましい。

本発明で特定される進入指数を満足する三層積層不織構造は、スパンボンド長纖維不織布の製造プロセスにおいて、移動する捕集体面状に溶融紡糸された多数本の連続長纖維群の堆積ウェブ(SW1)の全面に、メルトブロー微細纖維ウェブ(MW)を直に吹き付け堆積させてメルトブロー層を形成することを基本原理とする。さらに溶融紡糸された多数本の連続長纖維群のウェブ(SW2)を堆積する。

本発明において、連続長纖維は延伸により充分な強力の発現と寸法安定性を考えて紡速等を設定される。例えばポリエチレンテレフタレートでは紡速が 3000 m / min 以上、好ましくは 3500 m / min 以上で延伸紡糸される。長纖維ウェブの上に直接吹き付けたメルトブロー微細纖維層にさらに長纖維ウェブを積層した、いわゆる S M S 構造にする。これは、いわゆる S M の構造体であれば、長纖維層ウェブがある程度の結合が生じ強力を有する程度の一体化の熱圧着条件では、加熱ロールが直接メルトブロー層に接することになり、メルトブロー微細纖維が軟化乃至溶融して自身の破壊若しくは変形し、網目の纖維構造を失い易く、またメルトブロー纖維層が熱圧着ロールに取られ易くなり安定生産が困難になってしまふ。そこで、本発明では、 S M S 構造にして、直接メルトブロー纖維が加熱ロールに接触しない構造にすることにより、メルトブロー微細纖維が連続長纖維に進入して結合し、連続長纖維層が強力を発現できる条件での熱圧着を可能にしている。

進入指数は、メルトブロー微細纖維を紡出するメルトブロー紡糸ノズルと連続長纖維の堆積ウェブの捕集面の相対位置を 12 cm 前後に設定する方法、前記捕集面に作用する吸引力を高める方法に拘つても制御できる。意外にも、メルトブロー微細纖維を形成する樹脂素材の種類に拘っても、進入指数は相違する。ポリオレフィン樹脂によるよりも、ポリアミド樹脂、ポリエチレンテレフタレート樹脂等の 180 °C 以上の高融点を有する熱可塑性樹脂によるメルトブロー纖維の方が進入指数の大きい不織布が調整し易いことが判明している。

メルトブロー微細纖維の進入の具体的な形態については、メルトブロー微細纖維の吹き付けられた連続長纖維層への進入が、メルトブロー微細纖維が单一箇所で 1, 2 本の単纖維が、単独でひげ状や

絡みついたりするような形状では無く、もっとそれらが進んだ複数繊維の集合として層をなして進入している部分を形成しており、進入した層が長纖維の一部または全体を取り囲むように包埋、または交絡した配置する形態をとり、またその進入したメルトブロー微細纖維の一部が長纖維に接合しているような構造をメルトブロー層とメルトブローを吹き付けた長纖維層とに混和層として接合面の全体に持つ。但し層として進入することで、メルトブロー微細纖維によるフィルター性能やバリア性能を発現するメルトブロー層構造を壊さない程度のメルトブローの量は必要であり、好ましくはメルトブロー微細纖維率 10 wt % 以上かまたは、2 g / m² 以上あるといい。

進入指数は、紡糸条件における長纖維側の自由度と、メルトブロー微細纖維の低い結晶化度による糸条特性と、メルトブローの進入力、およびフラットロールによる加熱、加圧による更なる進入により発現する。

熱圧着による三層積層不織布構造の固定は、不織布の表面積で 50 % 以下の熱エンボス加工を適用するか、もしくは三層積層ウエブの全面に熱カレンダー加工を適用することにより行うことができる。

エンボス柄は基本的には大きく影響しないが、メルトブロー微細纖維層の損傷を招く恐れのある先端面積が小さく急激な大きな押し込みの凹凸を有するエンボス柄の使用は避けることが望ましい。エンボス面積が 6 % 未満以下の熱圧着加工では充分な布強力が得られず、50 % よりも大きいと、非部分圧着部分が少なくなり、流体が通過できる部分が少なくなる傾向となるので、好ましくない。ただし使用目的に合致したフィルター性能やバリア性になるのであるなら、一体化がフラットロールによる加熱加圧により行われてもよい

熱圧着温度は、連続長纖維をなす熱可塑性樹脂の融点から20℃低い温度から80℃程度低い温度範囲で、線圧は100N/cm以上から1000N/cm以下の範囲から選択する。ただし、圧力や温度が低いと連続長纖維同士の接合やメルトブロー微細纖維の軟化による連続長纖維の間の接合が生じず、層間剥離が容易に生じたり、連続長纖維纖維が綿状に剥離したりするなど、充分な布強度を発現する不織布構造が得られない。容易に層間剥離することがなく、強度や布帛としての取り扱い性を考慮すると、毛羽指数がほぼ2.5級以上となる不織布構造を得る加熱加圧条件を適宜選択することが好ましい。逆に、温度があまりにも高くて、圧力が高いと、微細纖維が溶けたり、長纖維層の外側までメルトブロー微細纖維が滲み出て加熱ロールに付着したりするので、熱圧着加工条件の設定に当たっては、メルトブロー纖維量と連続長纖維層の量、進入度合い、連続長纖維層の纖維径、分散などを考慮する必要がある。

本発明のスパンボンド系積層不織布の目付は、一般的に、10g/m²以上、250g/m²以下が選ばれる。10g/m²未満では、各種用途に使用するに強力が低い。長纖維層の目付けが5g/m²を下回るとメルトブロー微細纖維が過度に連続長纖維ウェブを突き抜けて、熱圧着後の風合いを低下させたり、微細纖維層の構造が破壊され易くなる。製造面では、長纖維ウェブが捕集面に喰い込むことになり、又メルトブロー纖維がエンボスロールに融着し易くなるので安定生産が困難となる。目付けが250g/m²を超えると、厚みが大きくなり、メルトブロー微細纖維量を増やして、より進入度を高めても、長纖維層の表層まで及びにくく、メルトブロー微細纖維の進入の効果を効率的に得ることができない。

メルトブロー微細纖維層の単位面積当たりの重量が積層不織布の全

目付けに対する比率は、製品不織布のバリア性やフィルター特性を満足するようにメルトブロー微細纖維の径と勘案して決定することができる。少なすぎると、既述の理由で、進入することで層構造を維持することができず、バリアー性やフィルター性が低下する。又、この比率が 50 % より大きくなると熱圧着時に軟化するメルトブロー纖維が多くなりすぎ、過度に連続長纖維層に進入することになるので、外側層である連続纖維層の表面まで露出したり、エンボス部分でも同様に表面化したり、軟化したメルトブロー纖維が樹脂化してエンボスロールに取られ易くなり、また積層不織布製品の表面やエンボス部の風合いを著しく硬くしてしまう。また積層不織布の目付あたりの引張り強力が、メルトブロー纖維の接着効果よりも連続長纖維の分率が減る分だけ低下することになり、好ましくない。

本発明のスパンボンド系積層不織布を構成する連続長纖維及びメルトブロー微細纖維は、纖維形成性の熱可塑性合成樹脂を纖維形成原料用いて調製される。纖維形成性熱可塑性合成樹脂は、熱可塑性樹脂からなるメルトブロー微細纖維および、連続長纖維からなるが、その熱可塑性樹脂は、ポリエステルまたは、その共重合体、それらの混合物からなるものである。例としてはポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレートや、ポリトリメチレンテレフタレート等をはじめとする、テレフタル酸、イソフタル酸やフタル酸、ナフタリンジカルボン酸等の芳香族ジカルボン酸と、エチレングリコール、ジエチレングリコール、1, 4-ブタンジオール、シクロヘキサンジメタノール等のジオールとが重合されたものであれば良い。また上記ポリエステルは生分解性樹脂、例えばポリ乳酸を始めとする脂肪族ポリエステルであってもよい。

それらに、本発明の効果を阻害しない程度に、ポリオレフィン類、ポリアミド類、ポリウレタン類を添加しても良いし、同様に本發

明の効果を阻害しない程度に、原着や、酸化チタン、紫外線吸収剤や、熱安定剤、酸化防止剤等の任意の添加剤が添加されても良い。

また熱可塑性樹脂が、ポリアミド例えば、ナイロン6、ナイロン66、ナイロン610、ナイロン612など、またはその共重合体、それらの混合物からなるものであってもよい。

それらに、本発明の効果を阻害しない程度に、ポリオレフィン類、ポリエステル類、ポリウレタン類を添加しても良いし、同様に本発明の効果を阻害しない程度に、原着や、酸化チタン、紫外線吸収剤や、熱安定剤、酸化防止剤等の任意の添加剤が添加されても良い。

ここでいう添加されるポリオレフィン類はポリエチレン、ホモポリプロピレンもしくは α オレフィン、エチレンをランダム共重合したポリプロピレンなどであってもよく又それらを混合したものであってもよい。

なお、本発明では、連続長纖維及びメルトブロー微細纖維が共に同種の樹脂原料を用いて纖維形成されることが、熱圧着による一体化加工における接着強度の発現を向上させる上で、好ましい。

メルトブロー微細纖維の積層に供給される連続長纖維ウェブの自由度は、メルトブローの吹き付け時のウェブめくれ防止のために予熱ロールや平滑ロール等で表面層の平滑化を行ったり、静電気を除去して纖維間の反発を弱めたり、コンベア面へ吸着させる吸引を行ったりすることでも自由度を下げる方向だが、メルトブローの直接紡糸時に連続長纖維の糸条が動き上記のメルトブロー纖維を連続長纖維に進入する構造形成できる程度にとどめなければならない。またメルトブローの紡糸条件としては、メルトブロー微細纖維の纖径と吐出量、連続長纖維の纖径と単位面積当たりの重量と分散、進入力を与える為の延伸加熱流体の速度、ノズルと連続長纖維ウェブが載

せられているコンベア面までの距離、吹き付け角度、メルトブロー微細纖維が着地する部分での吸引風速等の条件を選定する。そしてメルトブロー纖維同士またはメルトブロー纖維と連続長纖維の接合に関しては、メルトブロー微細纖維が捕集される時点での粘着性の有るメルトブロー紡糸の温度条件、ノズルからコンベア面までの距離も考慮して条件を選定する。

メルトブロー纖維の結晶化度は、前述の運転上の問題点ばかりでなく、進入にも影響し、結晶化度が40%より大きくなると、接着性が低下し、進入性も低下する。また柔軟性も低下し吹き付け時の進入が発現しにくく、熱圧着時にメルトブロー微細纖維層が軟化しにくくなり移動による進入が発現しにくくなる。

メルトブロー微細纖維の結晶化度を所定の範囲に収めるには、ポリエステル樹脂では、溶液粘度が η_{sp}/c が0.2~0.8好しくは0.2~0.5であれば、一般的なメルトブロー紡糸条件で結晶化度を調整可能である。またポリアミドでは溶液比粘度 η_{re} が1.8~2.7好しくは1.8~2.2であれば同様に調整可能である。一般的なポリプロピレンのメルトブロー微細纖維での紡糸後の結晶化度は約50%程度であり、ポリエステルやポリアミドに比べると高い値を示す。これは、冷却過程による効果が大きいと考えることができ、素材の融点が高い樹脂の方が軟化し易く進入も発現し易いと考えられる。

発明の最良の実施形態

[実施例]

以下に本発明の実施例を説明するが、本発明はこれら実施例のみに限られるものではない。

実施例及び比較例等において言及する特性値は、以下に記述する

測定法によるものである。

(1) 繊維の直径 [μm] (繊径) の測定

繊維ウエブ、不織布等の試料の両端部 10 cm を除いて、布帛の幅 20 cm 每の区域からそれぞれ 1 cm 角の試験片を切り取りってサンプルを調製した。各試験片について、マイクロスコープで繊維の直径を各 30 点づつ測定して、測定値の平均値を算出（小数点第 2 位を四捨五入）して、試料の構成繊維の繊径とした。

使用装置：キーエンス製 VT-8000

測定の倍率：連続長繊維では倍率 1000 倍、メルトブロー微細繊維では倍率 2500 倍

(2) 不織布の毛羽等級（耐毛羽性）[級]の測定

JIS L 0849 の摩擦堅牢度試験法に準じて、下記の測定法を案出して用いた。

不織布試料の両端 10 cm を除いて、布帛の幅 20 cm あたり MD 方向に長さ 300 mm、巾 25 mm の試験片を採取した。日本学術振興会型堅牢度試験機を用いて、摩擦子の荷重 200 g、摩擦子側に人膚に模擬される摩擦係数と考えられているリンレイクロスー重畠包用 No. 314 布粘着テープを取り付けて、試験片メルトブロー微細繊維の進入側の長繊維層の面側を 50 回動作（往復）させて、擦り、各々の試験片の被摩擦面を以下の基準で耐毛羽性を等級づけ、等級値の平均値（小数点第 2 位で四捨五入）を求めて、不織布の毛羽等級とした。

1 級：試験片が破損するほど繊維が剥ぎ取られる。

2 級：試験片が薄くなるほど甚だしく繊維が剥ぎ取られている。

2.5 級：毛玉が大きくはつきり見られ、複数箇所で繊維が浮き上がりはじめる。

3 級：はつきりとした毛玉ができはじめ、または小さな毛玉が複

数見られる。

3. 5級：一ヵ所に小さな毛玉ができはじめる程度に毛羽立つて
いる。

4級：毛羽立ちがない。

(3) 引裂強力[N]の測定

J I S L 1085 5・5 C法、ベンジュラム法に準じて、不織布
試料の両端10cmを除いて、幅20cm当たり、縦65mm×横1
00mmの大きさの試験片をMD方向、CD方向の各1枚を採取し
て、エレメンドルフ型引裂試験機を用いて測定した。測定値の平均
値を算出（小数点1位を4捨5入）した。なお、MD方向の測定デ
ータとは不織布をMD方向に引裂いた値を指す。

(4) 不織布の引張強力[N/3cm幅]の測定

不織布の両端10cmを除き、幅20cmあたり3cm×約20
cmの試験片をMD方向、CD方向の各1枚を採取し、定速伸張試
験型引張試験機に把握長10cmで取付け、30cm/分の引張速度
で試験片が破断するまで加重を加える。試験片の最大荷重時の強
さの平均値をMD、CD方向で求めた（N単位で小数点第1位を四
捨五入）。

(5) 不織布の通気度[cc/cm²/sec]の測定

J I S L-1096に記載のフラジール法に準じて測定した。
不織布の両端10cmを除いて、幅20cmあたりに1点を採取し
て、測定し、測定値の平均値（小数点2位を4捨5入）を算出した
。

(6) メルトブロー微細纖維の進入状況の観察方法

不織布の両端10cmを除いて布幅20cm毎に一箇所選んでサ
ンプル採取し、その幅長さ（1cm）の布のCD方向断面をエタノ
ール含浸不織布の液体窒素凍結試料を剃刀で切断し、得られた切断

面の Pt - Pd 蒸着 (0.1 torr 4.2 mA、エイコー社製 IB-5 使用) 断面を日立製作所社製電子顕微鏡 S-4100、FESEM を用いて、拡大倍率 500 倍程度で断面を観察する。

(7) 進入指数 [-] の測定算出

進入指数は、積層不織布の長纖維層に進入しているメルトプロー微細纖維の進入の程度を表し、進入指数が大きいほど、長纖維層へのメルトプロー微細纖維の混和（進入）レベルが大きいと判定する。

長纖維層内へのメルトプロー微細纖維の進入態様は、エタノール含浸液体窒素凍結した積層不織布試料から(6)と同条件で採取し、蒸着しないで調製した CD 方向の切断断面をキーエンス社製 VT-8000 で投射光条件でマイクロスコープ（註参照）を用いて、1500 倍程度映像を記録して以下の基準で長纖維層へのメルトプロー微細纖維層の進入状態を分別する（図 1 参照）。

a. 微細纖維層の長纖維層への進入を分別することができない、エンボスロールでの熱圧着で一体化した不織布のエンボス部分は、進入指数の測定、算出からは除く。一般に微細纖維の進入のない部分の微細纖維層 (M) と長纖維層との界面は明確に特定することができないので、長纖維層を構成する 2 つの隣接する 2 つの長纖維 (S₁₁、S₁₂；S₁₂、S₁₃；……S₁₅、S₁₆；……) の間の微細纖維層を含んでいる 2 つの長纖維の組み合わせを抽出する。但し、抽出した各組 2 つの長纖維の間の距離は長纖維の直径の三倍を超えないものとする。抽出した各組 2 つの長纖維の接線を捕集面とは反対側に引く。

b. この各接線を基準線として、各 2 長纖維間に進入している微細纖維層の基準線から最も離れている部位までの距離を求めこれを進入深さ (d₁、d₂、d₃、……d₁₅) (図 1 参照。1 断面あたり

15組抽出して、各組の進入深さを測定し、幅方向での平均値を求めて、2つの纖維間における微細纖維の進入深さの平均値 (d) (μm) とする。但し、抽出された各2長纖維間に進入している微細纖維の進入深さが、無限大になるのを防ぐ為、抽出した2長纖維のうち、捕集面側から離れている方と不織布の捕集面側の最外部との距離 (dc) と進入深さを比較して、進入深さが dc の 1.41 倍以上になっている場合は、その2長纖維の組み合わせでの進入深さを、dc の 1.41 倍の値とする。長纖維の直径 (D) (μm) は、纖径の測定方法により求める。そして、次式により進入指数を算出（小数点第3位4捨5入）する。

$$\text{進入指数} = d / D \quad (1)$$

註：断面観測は、マイクロスコープ観測の方が、電子顕微鏡に比べて、長纖維に多数のメルトブロー微細纖維が絡む接触があつても、抽出されるべき両者の接触部分の観察し易い。

6) 結晶化度 [%]の測定

試料纖維を約 8 mg 程量して、サンプルパンに入れ、サンプルシーラーを用いてサンプルを調製する。SIIナノテクノロジー社製 DSC210 を使用し、以下の条件で測定した（測定雰囲気：窒素ガス 50 ml/min、昇温速度：10 °C/min、測定範囲：25 ~ 300 °C）。

ポリエチレンは冷結晶化部があるので、以下の式で結晶化度（小数点第2位四捨五入）を求める。

結晶化度 %

$$= (\text{融解部の熱量} - \text{冷結晶部の熱量}) / \text{完全結晶の熱量}$$

・PET 完全結晶の熱量：126.4 J/g (“Macromol Physics” Academic Press, New York & London, Vol. 1, P389 (1973))

- ・ PP 完全結晶の熱量 : 165 J/g (J. Chem. Phys. Ref. Data, 10(4)1981 1051)
- ・ ナイロン 6 の完全結晶の熱量 : 190.8 J/g (J. Polymer Sci A-1, 1 2697 (1963))

(7) 不織布の耐水圧 [kPa] の測定

試料不織布の幅両端 10 cm を除き、布帛の幅 20 cmあたり 18 cm × 18 cm 角の試験片を調製し、JIS L 1092 に準じて測定しその平均値（小数点第 3 位四捨五入）を算出した。

(8) 溶液粘度測定法 [η_{sp}/c]

0.025 g のサンプルをオルソクロロフェノール (OCP) 25 ml に溶解する。90 °C に加温して（溶けなければ 120 °C）溶かす。測定温度は、35 °C 条件下で、粘度管による測定で行ない次式で計算する。n 数 3 点で、算術平均し、小数点第 3 位四捨五入で算出する。

$$\eta_{sp}/c = ((t - t_0) / t_0) / c$$

溶媒通過時間 : t_0 秒、溶液通過時間 : t 秒、C : 1000 mlあたりの溶質 g

(9) 相対粘度測定法 [η_{rel}]

0.025 g のサンプルを 98 % 硫酸 25 ml に常温で溶解する。測定温度は、25 °C 条件下で、粘度管による測定で行なう。n 数 3 点で、算術平均し、小数点第 2 位四捨五入で算出する。

$$\eta_{rel} = t / t_0$$

溶媒通過時間 : t_0 秒、溶液通過時間 : t 秒

(実施例 1 ~ 4)

汎用的なポリエチレンテレフタレートをスパンボンド法により、紡糸温度 300 °C でフィラメントの長纖維群を移動捕集面に向けて押し出し、紡糸速度 3500 m/min で紡糸し、コロナ帶電で $3 \mu C /$

g 程度帯電させて充分な開纖させて、平均纖径 $1.3 \mu\text{m}$ フィラメントからなる、 5 cm 変動率 1.5% 以下の均一性を付 25 g/m^2 の未結合長纖維ウェブを捕集ネット面上で調製した。

一方、ポリエチレンテレフタレート（溶液粘度 $\eta_{sp}/c = 0.50$ ）を、紡糸温度 300°C 、加熱エア温度 320°C 、吐出エア $1000 \text{ N m}^3/\text{hr}/\text{m}$ の条件下でメルトブロー法により紡糸して、平均纖径 $1.6 \mu\text{m}$ の極細纖維を付 10 g/m^2 のランダムウェブとして上記形成の長纖維ウェブに向けて直に噴出させる。この際のメルトブローノズルから長纖維ウェブ上面までの距離は、 100 m とし、メルトブローノズル直下の捕集面における吸引を 0.2 kPa 、風速約 7 m/sec に設定した。かくして、長纖維集合ウェブ層内への堆積メルトブロー微細纖維の進入が助長された、メルトブロー微細纖維ウェブ/長纖維ウェブ（MW/SW1と略記）を調製した。

メルトブロー微細纖維ウェブ/長纖維ウェブの極細纖維ウェブ面上に、更にポリエチレンテレフタレートの長纖維ウェブを最初に調整した長纖維と同様にして開纖し、直に長纖維ウェブ/メルトブロー微細纖維ウェブ/長纖維ウェブでなる三層積層ウェブ（SW2/MW/SW1）調製し、次いで、SW2/MW/SW1をエンボスロールとフラットロールの間に通して、熱圧着させ、積層層間不織布構造が固定された3積層不織布S/M/Sを得た。熱圧着加工は、エンボスロールは布折り目柄、面積率 14.4% であり、ラットロールとの間に、線圧 365 N/cm 一定下に、エンボスロール温度について異なる実施例1～4の積層不織布を調製した。実施例1～4の不織布における熱圧着条件不織布の構造及び使用性能に関する諸データを示す。但し、耐毛羽性は捕集面側について、測定した。

(比較例 1～4)

ポリエチレンテレフタレート（溶液粘度 $\eta_{sp}/c = 0.50$ ）をメルトブロー紡糸条件、紡糸温度 300°C、加熱エア温度 320°C、吐出ガス量 1000 Nm³/hr の下で、メルトブローノズルから 100 mm の捕集面に吐出して、平均纖径 1.6 μm の極細纖維である、目付け 10 g/m² の自己接着したメルトブロー極細纖維不織布を得た。

実施例 1～4 と同方法、同様条件を用いるスパンボンド法により調製された長纖維ウェブ（SW1）の上面に、上記で調製されたメルトブロー極細纖維不織布を巻き出して、直に重ね、更にこの上に前記第 1 の長纖維ウェブと同一条件下でスパンボンド法により紡糸されるポリエチレンテレフタレートの連続長纖維をウェビング（SW2）することで、三層積層ウェブ（SW/MW/SW）を調製して、実施例 1～4 と同じ条件での熱圧着法を適用して、三層積層不織布を調製した。

比較例 1～4 サンプルを採取した。

表 1 に、比較例 1～4 の積層不織布における熱圧着条件と積層不織布の構造及び使用性能に関する諸データを示す。但し、耐毛羽性は捕集面側について測定したものである。

表1 実施例(1~4) / 比較例(1~4)

	作成条件	不織布特性		引張強力	
		ロール温度	進入指数	耐毛羽性	平均
			—	級	N / 3 cm
実施例1	170	0.40	3.0	68	21.4
実施例2	190	0.38	3.5	92	15.0
実施例3	210	0.41	3.8	108	17.4
実施例4	220	0.40	4.0	100	13.6
比較例1	170	0.15	3.0	56	—
比較例2	190	0.18	3.5	80	—
比較例3	210	0.16	3.8	92	—
比較例4	220	0.17	4.0	88	—

表1は、本発明の積層不織布が、比較例1~4の積層不織布と比べて、毛羽等級が同等レベルに固定された不織布構造をもっていながらも、引張強力について10%以上も著しく向上していることを示している。本発明の積層不織布は、エンボスロール温度が高い、実施例2、比較例4でも、引張強力の向上が見られるので、不織布の機械的物性を損なわずに不織布構造を固定することができる(Fig. 4参照)とエンボス部でない部分での補強があることを示しており、まさしく進入の効果による引張強力であることが判る。

(実施例5~8)

実施例1~4と同様の条件で調製された三層積層ウエブ(SW2/MW/SW1)に、MDの引裂強力が所定の値となるようエンボス温度を変えて熱圧着処理して、構造の固定された三層不織布を調整した。表2に不織布の使用性能を示す。

(比較例5~8)

比較例1~4と同様の条件を用いて調製された三層積層ウエブ(

S W / M W / S W) に、MD の引裂強力が所定の値となるようエンボス温度を変えて熱圧着処理して構造の固定された三層不織布を調製した。表 2 に不織布の使用性能を示す。

表 2 実施例 (5 ~ 8) / 比較例 (5 ~ 8)

	不織布特性	引裂強力	引張強力
	進入指数	MD 方向	MD 方向
	—	N	N / 3 cm
実施例 5	0.40	15	88
実施例 6	0.42	10	108
実施例 7	0.40	5	130.4
実施例 8	0.39	3	136
比較例 5	0.16	15	72
比較例 6	0.18	10	98.4
比較例 7	0.18	5	120
比較例 8	0.17	3	128

表 2 は、微細纖維のスパンボンド連続長纖維層への進入度が増大すると、微細纖維の連続長纖維との結合、包埋、交絡等による不織布構造の固定点を不織布内部においても増加させてるので、不織布強力が同等であっても、不織布の引裂強力を高めることを示している。

フィルターとして使用される際積層不織布は、加熱変形時や流体通過時の不織布内部微細纖維構造の網目構造が変形しにくいことが重要である。本発明の積層不織布では、連続纖維層の断面に多数のメルトブロー極細纖維が進入する構造を形成することで引張強力が高まり、それに応じてモジュラスが高まる事、引裂強力が高まる事から不織布内部の微細纖維構造の網目構造が変形しにくいものにしていることが判る。

(実施例 9)

実施例 3 を、フッ素系撥水剤を純分で 1 % 塗布して充分に乾燥した。耐水圧を測定した結果を表 3 に示す。

(比較例 9)

比較例 3 をフッ素系撥水剤を純分で 1 % 塗布して充分に乾燥した。耐水圧を測定した結果を表 3 に示す。

表 3 実施例 (9) / 比較例 (9)

	進入指數	耐水圧
	—	kPa
実施例 9	0.41	0.65
比較例 9	0.16	0.44

表 3 は、本発明が上述するように、メルトブローが進入することにより微細纖維構造の網目構造が補強されているかを見るために変形を有する測定法である耐水圧の評価を行った結果を示す。本発明は、耐水圧が向上することから、良好なフィルター、バリア効果を示すことが判る。

(実施例 10)

実施例 1 ~ 4 と同様の条件で調整された三層積層ウェブ (SW2 / MW / SW1) に、フラットロールによる加熱加圧処理を行ない一体化させる。線圧は、270 N / cm で、耐毛羽性をフラットロール温度にて調整して実施例 10 を採取した。表 4 に不織布の構造及び使用性能のデータを示す。

(比較例 10)

比較例 1 ~ 4 と同様の条件で調整された三層積層ウェブ (SW / MW / SW) に、フラットロールによる加熱加圧処理を行ない一体化させる。線圧は、270 N / cm で、耐毛羽性をフラットロール温度にて調整して比較例 10 を採取した。表 4 に不織布の構造及び使用性能のデータを示す。

フラットプレスのカレンダ加熱圧着によれば、進入の程度が大きいので、エンボス熱圧着法よりも、引張強力の増加効果が大きい。

表 4 実施例(10) / 比較例(10)

	進入指数	毛羽	平均強力	向上率
	—	級	N / 3 cm	%
実施例 10	0.60	2.5	128	28.0
比較例 10	0.32	2.5	100	—

(実施例 11、12)

汎用的なナイロン6をスパンボンド法により、紡糸温度265°Cでフィラメントの長纖維群を移動捕集面に向けて押し出し紡糸し、コロナ帶電で $6 \mu C/g$ 程度の帶電をさせて充分な開纖させて平均纖径 $15 \mu m$ フィラメントからなる、5cm目付変動率15%以下の均一性の目付け $25 g/m^2$ の未結合ウェブを捕集ネット上で調整した。一方ナイロン6(溶液相対粘度 $\eta_{rel} : 2.1$)を用い、公知のメルトブロー法により、紡糸温度270°C、加熱エア320°C、 $1100 nm^3/hr/m$ で、平均纖径 1.6μ で $10 g/m^2$ になるように吐出し、更にナイロン6のスパンボンドウェブを最初のウェブと同様に、 $25 g/m^2$ を、メルトブローの上に積層して、三層積層ウェブ(SW2/MW/SW1)を調製し、熱圧着は実施例1~4と同様のエンボスロールで同様の線圧とした。エンボスロール温度で、耐毛羽性を調整し実施例11を採取した。またライン速度を変えて、全体の目付が $40 g/m^2$ の実施例12を採取した。表5に不織布の構造及び使用性能のデータを示す。

(比較例 11、12)

ナイロン6(溶液相対粘度 $\eta_{rel} : 2.1$)を用い、公知のメルトブロー法により、紡糸温度270°C、加熱エア320°C、 $1100 nm^3/hr/m$ で、メルトブローノズルから $100 mm$ の

捕集面に吐出し、平均纖径 1.6μ で目付け 10 g/m^2 6.7 g/m^2 の自己接着したメルトブロー極細纖維不織布を得た。実施例 11、12 と同方法、同条件を用いるスパンボンド法により調整された長纖維ウェブ (SW) の上に、上記で調整されたメルトブロー極細纖維不織布を巻き出して、直に重ね、更にこの上に前記第一の長纖維ウェブと同一条件下でスパンボンド法により紡糸されるナイロン 6 の連続長纖維をウェビングすることで、3 積層ウェブ (SW/MW/SW) を調整して実施例 11、12、と同じ条件での熱圧着を適用して三層積層不織布を調整した。熱圧着は、実施例 1～4 と同様のエンボスロールで同様の線圧とした。エンボスロール温度で、耐毛羽性を調整し実施例 11 を採取した。またライン速度を変えて、上記で調整されたメルトブロー極細纖維不織布 6.7 g/m^2 を供給して、比較例 11 と同様にして、比較例 12 を採取した。

表 5 に不織布の構造及び使用性能のデータを示す。

表 5 実施例 (11, 12) / 比較例 (11, 12)

	進入指数	毛羽 級	平均強力 N/3cm	向上率
実施例 11	0.41	3.2	140	16.7
実施例 12	0.38	2.8	88	17.3
比較例 11	0.23	3.2	120	
比較例 12	0.21	2.8	75	

ナイロン不織布においても、ポリエステル不織布の場合と同様に強力も向上する。ナイロンスパンボンド不織布は、柔軟性に優れ、染色や印刷もでき意匠性の高い、高強力ナイロン SMS 積層不織布を調製することが可能であることが確認できた。

(実施例 13～15)

実施例 1～4 と同様の条件で調整された三層積層ウェブ (SW2

／MW／SW1) に、エンボスロールによる加熱加圧処理を行ない一体化させる。メルトブローの纖径は、加熱エア量で調整し、量は長纖維の紡口ホール数で調整する。メルトブロー層の両側に配置されるスパンボンドウェブの目付は、どちらも同じにする線圧は、365 N/cm で、ロール温度は 210 °C で実施例 13～15 を採取した。表 6 に積層不織布の構造及び使用性能のデータを示す。

(実施例 16～18)

実施例 10、11 と同様の条件で調整された三層積層ウェブ (SW2/MW/SW1) に、フラットロールによる加熱加圧処理を行ない一体化させる。メルトブロー層の両側に配置されるスパンボンドウェブの目付は、どちらも同じにするメルトブローの纖径は、加熱エア量で調整し、長纖維の目付は紡口ホール数に基いて調整した。線圧は、270 N/cm で、ロール温度は 210 °C で実施例 16～18 を採取した。表 6 に積層不織布の構造及び使用性能のデータを示す。

表 6 実施例 (13～18)

	総目付 g/m ²	MB目付 g/m ²	纖径 μm	進入指数	通気度 c.c./cm ² /s
実施例 13	70	11.7	1.8	0.39	10.0
実施例 14	30	7	1.8	0.44	31.0
実施例 15	70	16.3	1.8	0.40	5.0
実施例 16	72	16.7	4.6	0.54	7.7
実施例 17	72	16.7	2.2	0.61	2.2
実施例 18	72	12	1.5	0.56	2.5

微細纖維を連続長纖維に進入させ、熱圧着で一体化したものは、メルトブローの纖径、量からみて、通気度は適度な値を示しており、微細纖維構造が無くなるほど、進入により微細纖維のバリア機能

が変化しているわけでも、逆に、微細纖維構造がすべて溶けてフィルム状になりフィルター機能がなくなっている一例である。

(実施例 19～20、比較例 13, 14)

実施例 1～4 と同様の条件で調整された三層積層ウェブ (SW2/MW/SW1) に、エンボスロールによる圧着処理を行ない一体化させる。ただし、ライン速度を調整し総目付けを 30 g/m^2 にする。線圧は、 365 N/cm で、ロール温度は 210°C で一定とした。メルトブローの結晶化度を、加熱エア量を $500 \sim 1500 \text{ N m}^3/\text{hr}/\text{m}$ で調整して、実施例 19～20、比較例 13, 14 を採取した。ロールの汚れは、30 分間運転して、熱圧着をするエンボスロール又はその対となるフラットロールに不織布表面の纖維が引き上げられる程度の汚れがあるか否かで判断する。汚れがなければ “○” あれば “×” と記載する。

表 7 実施例 (19～20) / 比較例 (13, 14)

	結晶化度 %	ロール汚れ	平均強力 N/cm
比較例 13	14.1	×	61
実施例 19	17.8	○	59
実施例 20	34.3	○	58
比較例 14	40.5	○	54

結晶化度は、あまり高くても接着強力の低下に影響し、進入の程度にも関係すると思われる。低くしすぎると、メルトブロー微細纖維がエンボス部や、長纖維部の隙間から不織布の表面層に露出すると、熱圧着するロールに、軟化して、接着してしまい、ロール汚れを誘発してしまい、布表面に再付着したり、布表面の糸を引き剥がしたり、ロール取られで安定的な生産ができないくなる。このバラン

スが重要と考えられる。

発明の産業上の利用可能性

本発明の積層不織布は、メルトブロー微細纖維層を挟み配置される連続長纖維層からなる積層不織布構造を有し、かつ少なくとも一方の連続長纖維層が前記メルトブロー微細纖維を0.36以上の進入指数で含む混和層を有する長纖維層を形成してなる引張り強力等機械物性に優れ、フィルター性、バリア性スパンボンド系積層不織布である。

本発明の積層不織布は、不織構造を形成する微細纖維層による耐久性のあるさまざまなフィルター及びバリア機能を有するスパンボンド系不織布材料であり、対応するスパンボンド不織布に比べて遙かに引張強力にすぐれる不織布材料である。

請求の範囲

1. 繊維径が $7 \mu m$ 以上で $20 \mu m$ 以下の熱可塑性合成長纖維層を上下層とし、纖維径が $5 \mu m$ 以下の熱可塑性合成微細纖維の少なくとも 1 層でなる中間層とし、圧着により一体化された積層不織布において、前記中間層を構成する微細纖維の一部が長纖維層の少なくとも一面に進入指数が 0.36 以上で進入して、長纖維を結合又は包埋若しくは交絡した混和構造層を有し、積層不織布の目付けが $10 g$ 以上 $250 g / m^2$ 以下であり、嵩密度が $0.20 g / cm^3$ 以上であることを特徴とする高強力不織布。
2. 微細纖維の纖維径が 3μ 以下である請求項 1 記載の高強力不織布。
3. 微細纖維が複数集合した層状で長纖維層に進入し、微細纖維の集合が長纖維と結合又は包埋若しくは交絡した構造を有することを特徴とする請求項 1 ~ 3 記載の高強力不織布。
4. 該微細纖維の含有率が $50 wt\%$ 以下である請求項 1 ~ 3 記載のいずれかに記載の高強力不織布
5. 連続長纖維をなす熱可塑性樹脂が主としてポリエステルまたはその共重合体、もしくはそれらの混合物からなるものであり、微細纖維をなす熱可塑性樹脂が主としてポリエステル系樹脂またはその共重合体、もしくはそれらの混合物からなるものであることを特徴とする請求項 1 ~ 4 のいずれかの請求項に記載の高強力不織布。
6. 微細纖維をなすポリエステル系樹脂の溶液粘度 η_{sp} / c が $0.2 \sim 0.8$ であることを特徴とする請求項 5 に記載の不織布。
7. 連続長纖維をなす熱可塑性樹脂が主としてポリアミド系樹脂またはその共重合体、もしくはそれらの混合物からなるものであり、微細纖維が主としてポリアミド系樹脂またはその共重合体、もし

くはそれらの混合物からなるものであることを特徴とする請求項 1～4 に記載の高強力不織布。

8. メルトブロー細纖維をなすポリアミドの溶液相対粘度 $\eta_{r e}$ 1 が、1. 8～2. 7 であることを特徴とした請求項 7 記載の高強力不織布。

9. 熱可塑性合成樹脂を用いて少なくとも 1 層以上の長纖維をコンベアー上に紡糸し、その上に熱可塑性合成樹脂を用いてメルトブロー法で結晶化度が 15 % 以上 40 % 以下であるような微細纖維を少なくとも 1 層以上吹き付け、その後、熱可塑性合成樹脂をもちいた長纖維を少なくとも 1 層以上積層し、熱圧着温度が長纖維の融点より -10 ～ -80 °C であり、熱圧着の線圧が 100 N/cm ～ 1000 N/cm であり、エンボスロールまたはフラットロールを用いた圧着により一体化することを特徴とする高強力不織布の製造方法。

10. ポリエステル系樹脂を用いて少なくとも 1 層以上の長纖維をコンベアー上に紡糸し、その上に溶液粘度 η_{sp}/c が 0. 2 ～ 0. 8 であるポリエステル系樹脂を用いてメルトブロー法で結晶化度が 15 % 以上 40 % 以下であるような微細纖維を少なくとも 1 層以上吹き付け、その後、ポリエステル系樹脂をもちいた長纖維を少なくとも 1 層以上積層したことを特徴とする請求項 9 に記載の高強力不織布の製造方法。

11. ポリアミド系樹脂を用いて少なくとも 1 層以上の長纖維をコンベアー上に紡糸し、その上に溶液相対粘度 $\eta_{r e}$ 1 が 1. 8 ～ 2. 7 であるポリアミド系樹脂を用いてメルトブロー法で微細纖維を少なくとも 1 層以上吹き付け、その後、ポリアミド系樹脂をもちいた長纖維を少なくとも 1 層以上積層したことを特徴とする請求項 9 に記載の高強力不織布の製造方法。

Fig. 1

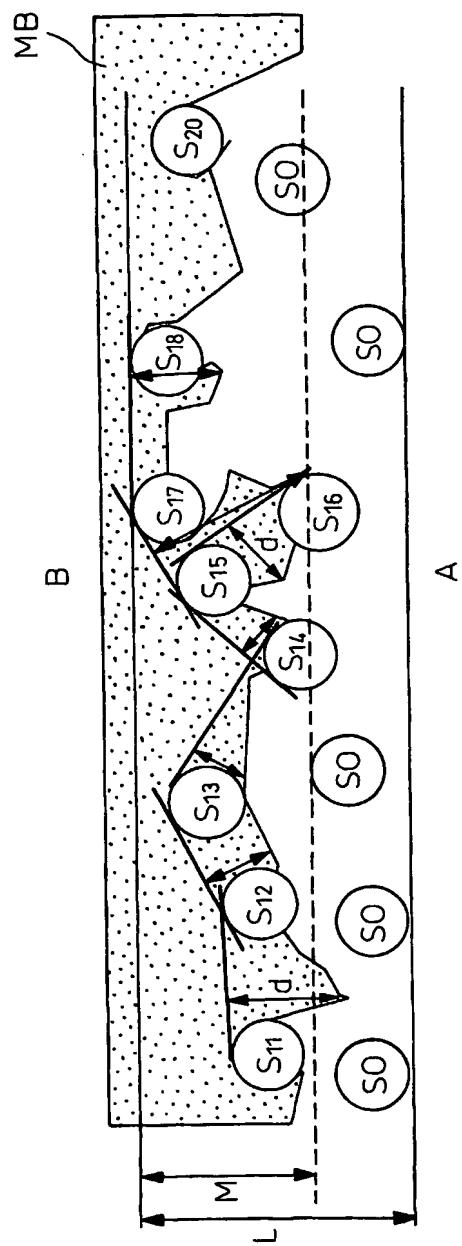


Fig.2

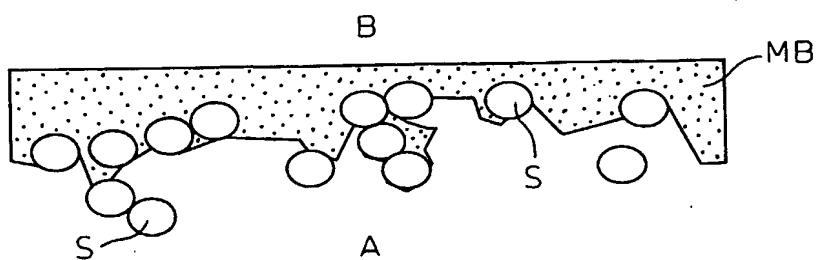


Fig.3

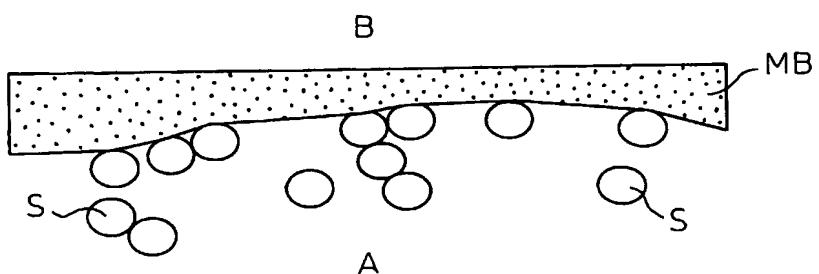


Fig. 4

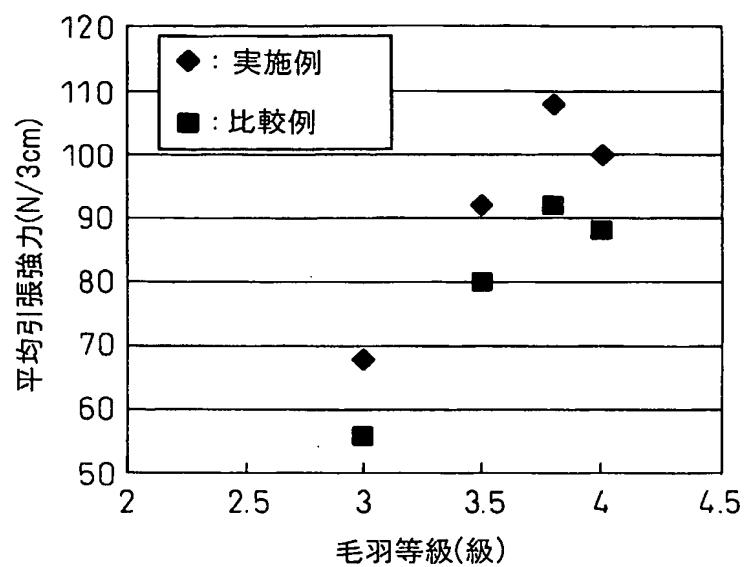
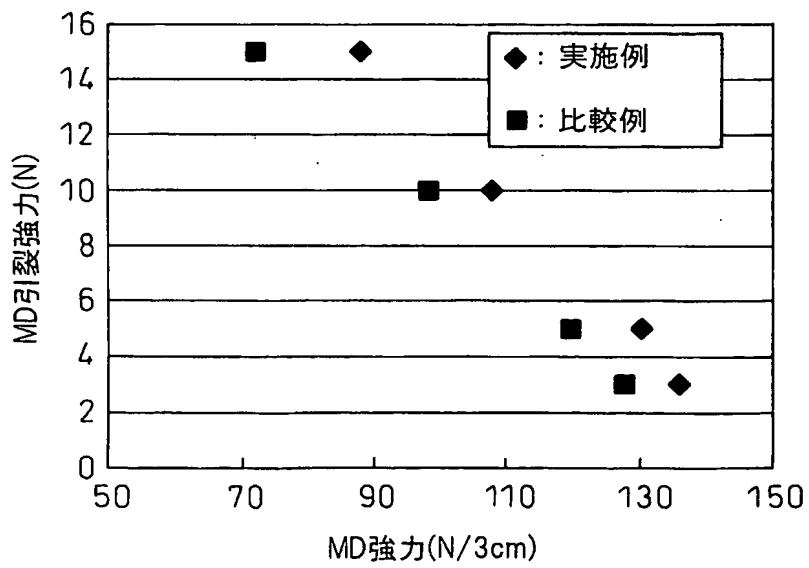


Fig. 5



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.